



PCT/PTO 14 DEC 2004  
PCT/EP 03/06173

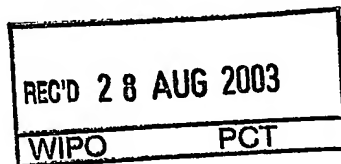
# ÖSTERREICHISCHES PATENTAMT

A-1200 Wien, Dresdner Straße 87

EPO-BERLIN

08-07-2003

Kanzleigebühr € 47,00  
Gebührenfrei  
gem. § 14, TP 1. Abs. 3  
Geb. Ges. 1957 idgF.



Aktenzeichen **A 905/2002**

Das Österreichische Patentamt bestätigt, dass

**die Firma Agrolinz Melamin GmbH  
in A-4021 Linz, St.-Peter-Straße 25  
(Oberösterreich),**

am **14. Juni 2002** eine Patentanmeldung betreffend

**"Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität",**

überreicht hat und dass die beigeheftete Beschreibung mit der  
ursprünglichen, zugleich mit dieser Patentanmeldung überreichten  
Beschreibung übereinstimmt.

Österreichisches Patentamt

Wien, am 6. Juni 2003

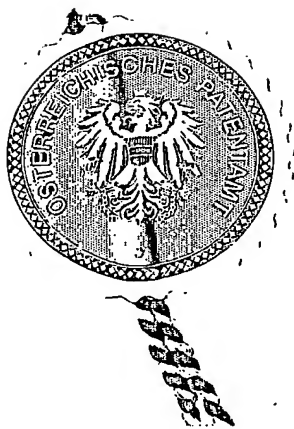
Der Präsident:

i. A.



**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

**HRNCIR**  
Fachoberinspektor



# Urtext

11 Nr.

## Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität

Die Erfindung betrifft Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität sowie ein Verfahren zu deren Herstellung.

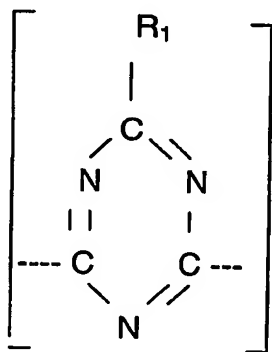
Erzeugnisse aus Aminoplasten wie Melamin-Formaldehyd-Harzen oder Melamin-Harnstoff-Formaldehyd-Harzen [Ullmanns Encyclopedia of Industrial Chemistry (1987), Vol. A2, 130-131] sind bekannt. Von Nachteil bei der Herstellung von Erzeugnissen aus Melaminharzen ist die schwierige Verarbeitbarkeit nach üblichen thermoplastischen Verarbeitungsverfahren wie Extrusion, Spritzguss oder Blasformen sowie deren geringe Flexibilität.

Niedermolekulare Melaminharz-Vorkondensate besitzen eine zu geringe Schmelzviskosität für diese Verarbeitungsverfahren und können zu Erzeugnissen lediglich als hochgefüllte Formmassen bei langen Zykluszeiten unter Härtung der Erzeugnisse verarbeitet werden (Woebcken, W., Kunststoff-Handbuch Bd. 10 "Duroplaste", Carl Hanser Verl. München 1988, S. 266-274). Melaminharzerzeugnisse in Form von Fasern, Schäumen oder Beschichtungen können auf Grund der niedrigen Schmelzviskosität der Melaminharzvorkondensate nur ausgehend von Lösungen der Melaminharzvorkondensate unter Aushärtung während der Formgebung hergestellt werden.

Bekannte Verfahren zur Verbesserung der Flexibilität von Melaminharzerzeugnissen sind der Zusatz von Polyvinylalkohol bei der Herstellung von Melaminharzfasern durch Verspinnen aus Lösung (DE 23 64 091 B2) oder der Einsatz von Melaminharzen, die mit Alkylendiaminen, Alkoxyalkylaminen bzw. Dicyandiamid modifiziert sind, bei der Herstellung von Post-Forming-Laminaten (WO 96 30 422 A1). Bei der Herstellung der Erzeugnisse verbesserter Flexibilität werden jedoch Melaminharzlösungen eingesetzt.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung sind Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität, die durch thermoplastische Verarbeitungsverfahren hergestellt werden können.

Die erfindungsgemässe Aufgabe wurde durch Aminoplasterzeugnisse gelöst, die erfindungsgemäss Erzeugnisse auf Basis von Aminoplast-Formmassen sind, die aus Mischungen aus schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern bestehen, wobei in den Polytriazinethern die Triazinsegmente



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-O-R_3, -NH-CHR_2-O-R_4-OH, -OH, \text{Phthalimido-}, \text{Succinimido-}$

$-NH-CHR_2-O-R_4-O-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-O-CHR_2-NH-,$

$R_2 = H, C_1-C_7 - \text{Alkyl};$

$R_3 = C_1-C_{18} - \text{Alkyl}, H;$

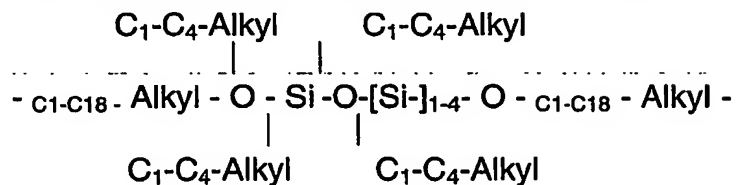
$R_4 = C_2-C_{18}\text{-Alkylen}, -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$   
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Arylen-O-CH}_2-CH(CH_3)-,$   
 $-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[-O-CH_2-CH_2-$   
 $CH_2-CH_2-]_n-,$

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8-}]_n-,$

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8-}]_n-,$

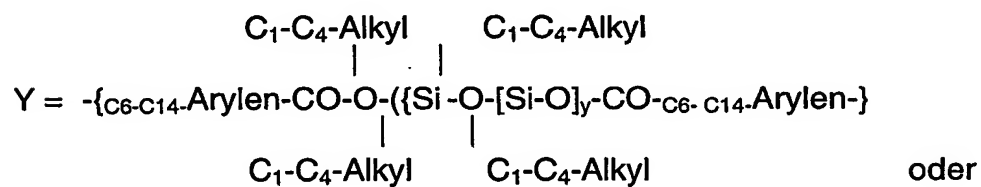
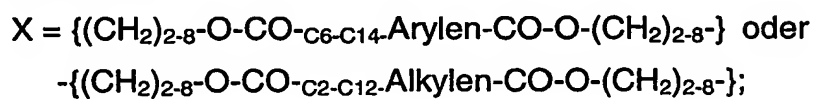
wobei  $n = 1$  bis 200;

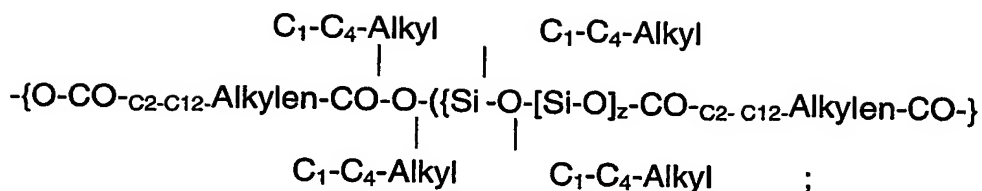
- Siloxangruppen enthaltende Sequenzen des Typs



- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-(X)_r\text{-O-CO-(Y)}_s\text{-CO-O-(X)}_r\text{-}$ ,

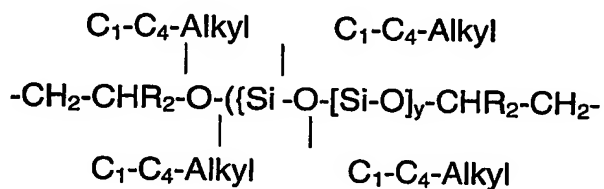
bei denen





$r = 1$  bis 70;  $s = 1$  bis 70 und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_2 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ

$\text{-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkyl-O-C}_6\text{-C}_{18}\text{-Aryl-O-C}_2\text{-C}_8\text{-Alkyl-}$  Sequenzen;

durch Brückenglieder  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  und  $\text{-NH-CHR}_2\text{-NH-}$  sowie gegebenenfalls  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  zu 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern mit linearer und/oder verzweigter Struktur verknüpft sind,

wobei in den Polytriazinethern das Molverhältnis der Substituenten  $R_3 : R_4 = 20 : 1$  bis  $1 : 20$  beträgt,

der Anteil der Verknüpfungen der Triazinsegmente durch Brückenglieder  $\text{-NH-CHR}_3\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_3\text{-NH-}$  5 bis 95 Mol% beträgt,

und wobei die Aminoplast-Formmassen bis zu 75 Masse% Füllstoffe und/oder Adsorbermaterialien, bis zu 50 Masse% weitere reaktive Polymere vom Typ Ethylen-Copolymere, Maleinsäureanhydrid-Copolymere, modifizierte

Maleinsäureanhydrid-Copolymere, Poly(meth)acrylate, Polyamide, Polyester und/oder Polyurethane, bis zu 20 Masse% Diole des Typs HO - R<sub>4</sub> - OH, sowie bis zu 5 Masse% Stabilisatoren, UV-Absorber, Härter und/oder Hilfsstoffe, enthalten können.

Bevorzugt sind die Aminoplasterzeugnisse durch Schmelzverarbeitung hergestellte Halbzeuge, insbesondere Platten, Rohre, Profile, Beschichtungen, Schaumstoffe oder Fasern, oder Formstoffe, insbesondere Spritzgussteile, oder aus Fasern nach der Wickel-, Flecht- oder Pultrusionstechnik und nachfolgender Harzimprägnierung hergestellte Bauteile.

In den Aminoplast-Formmassen, die die Basis der erfindungsgemässen Aminoplasterzeugnisse bilden, werden als Polytriazinether in den Mischungen Polytriazinether mit R<sub>2</sub> = H bevorzugt.

Die Mischungen aus Polytriazinethern in den Aminoplast-Formmassen können Gemische aus Polytriazinethern mit gleichem oder unterschiedlichem Substituent R<sub>1</sub> = -NH<sub>2</sub>, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-R<sub>3</sub>, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-R<sub>4</sub>-OH, -OH, Phthalimido-, Succinimido-, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-R<sub>4</sub>-O-CHR<sub>2</sub>-NH-, -NH-CHR<sub>2</sub>-NH-, -NH-CHR<sub>2</sub>-O-CHR<sub>2</sub>-NH- sein.

Die in den Aminoplasterzeugnissen enthaltenen Füllstoffe bzw. Adsorbermaterialien sind bevorzugt Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al(OH)<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Glaskugeln, Kieselerde, Glimmer, Quarzmehl, Schiefermehl, Mikrohohlkugeln, Russ, Talkum, Schichtsilikate, Molekularsiebe, Gesteinsmehl, Holzmehl, Cellulose, Cellulosederivate. Besonders bevorzugt als Füllstoffe werden Schichtsilikate vom Typ Montmorillonit, Bentonit, Kaolinit, Muskovit, Hectorit, Fluorhectorit, Kanemit, Revdit, Grumantit, Ilerit, Saponit, Beidelit, Nontronit, Stevensit, Laponit, Taneolit, Vermiculit, Halloysit, Volkonskoit, Magadit, Rectorit, Kenyait, Sauconit, Borfluorphlogopite und/oder synthetische Smectite. Als Adsorbermaterial werden Schichtsilikate vom Typ Montmorillonit, Bentonit und Hectorit, Molekularsiebe des Typen A, X, Y, besonders 5A, Adsorber auf

Siliciumdioxidbasis, Mikrohohlkugeln, Cellulose und/oder Cellulosederivate besonders bevorzugt.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Ethylen-Copolymere, die in den Aminoplasterzeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind teilverseifte Ethylen-Vinylacetat-Copolymere, Ethylen-Butylacrylat-Acrylsäure-Copolymere, Ethylen-Hydroxy-ethylacrylat-Copolymere oder Ethylen-Butylacrylat-Glycidylmethacrylat-Copolymere.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Maleinsäureanhydrid-Copolymere, die in den Aminoplasterzeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefin - Maleinsäureanhydrid-Copolymere oder Copolymere aus Maleinsäureanhydrid und  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten.

Beispiele für die  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefin - Komponenten, die in den Maleinsäureanhydrid-Copolymeren enthaltenen sein können, sind Ethylen, Propylen, Buten-1, Isobuten, Diisobuten, Hexen-1, Octen-1, Hepten-1, Penten-1, 3-Methylbuten-1, 4-Methylpenten-1, Methylethylpenten-1, Ethylpenten-1, Ethylhexen-1, Octadecen-1 und 5,6-Dimethylnorbornen.

Beispiele für die  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten - Komponenten, die in den Maleinsäureanhydrid-Copolymeren enthaltenen sein können, sind Styren,  $\alpha$ -Methylstyren, Dimethylstyren, Isopropenylstyren, p-Methylstyren und Vinylbiphenyl.

Die in den Aminoplasterzeugnissen gegebenenfalls enthaltenen modifizierten Maleinsäureanhydrid-Copolymere sind bevorzugt partiell oder vollständig veresterte, amidierte bzw. imidierte Maleinsäureanhydrid-Copolymere.

Besonders geeignet sind modifizierten Copolymere aus Maleinsäureanhydrid und  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefinen bzw.  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten mit einem Molverhältnis von 1 : 1 bis 1 : 9 und Molmassen-Gewichtsmitteln von 5000 bis 500000, die mit Ammoniak,  $C_1$ -



C<sub>18</sub>-Monoalkylaminen, C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-aromatischen Monoaminen, C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>-Monoaminoalkoholen, monoaminierten Poly(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylen)oxiden einer Molmasse von 400 bis 3000; und/oder monoveretherten Poly(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylen)oxiden einer Molmasse von 100 bis 10000 umgesetzt worden sind, wobei das Molverhältnis Anhydridgruppen Copolymer / Ammoniak, Aminogruppen C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Monoalkylamine, C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-aromatische Monoamine, C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>-Monoaminoalkohole bzw. monoaminiertes Poly-(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylen)oxid und/oder Hydroxygruppen Poly(C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylen)oxid 1 : 1 bis 20 : 1 beträgt.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Poly(meth)acrylate, die in den Aminoplastergezeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind Copolymere auf Basis von funktionellen ungesättigten (Meth)acrylatmonomeren wie Acrylsäure, Hydroxyethylacrylat, Glycidylacrylat, Methacrylsäure, Hydroxybutylmethacrylat, oder Glycidylmethacrylat und nichtfunktionellen ungesättigten (Meth)acrylatmonomeren wie Ethylacrylat, Butylacrylat, Ethylhexylacrylat, Methylmethacrylat, Ethylacrylat und/oder Butylmethacrylat und/oder C<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>-Vinylaromaten. Bevorzugt werden Copolymere auf Basis Methacrylsäure, Hydroxyethylacrylat, Methylmethacrylat und Styren.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Polyamide, die in den Aminoplastergezeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind Polyamid-6, Polyamid-6,6, Polyamid-11, Polyamid-12, Polyaminoamide aus Polycarbonsäuren und Polyalkylenaminen sowie die entsprechenden methoxilierten Polyamide.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Polyester, die in den Aminoplastergezeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind Polyester mit Molmassen von 2000 bis 15000 aus gesättigten Dicarbonsäuren wie Phthalsäure, Isophthalsäure, Adipinsäure und/oder Bernsteinsäure, ungesättigten Dicarbonsäuren wie Maleinsäure, Fumarsäure und/oder Itakonsäure und Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol und/oder Hexandiol. Bevorzugt

werden verzweigte Polyester auf Basis von Neopentylglycol, Trimethylolpropan, Isophthalsäure und Azelainsäure.

Beispiele für reaktive Polymere vom Typ Polyurethane, die in den Aminoplastergezeugnissen bis zu 50 Masse% enthalten sein können, sind unvernetzte Polyurethane auf Basis von Toluylendiisocyanat, Diphenylmethandiisocyanat, Butandiisocyanat und/oder Hexandiisocyanat als Diisocyanatkomponenten und Butandiol, Hexandiol und/oder Polyalkylenglycolen als Diolkomponenten mit Molmassen von 2000 bis 30000.

In den erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnissen können bis zu 20 Masse% Diole des Typs  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$  enthalten sein.

Beispiele für Diole vom Typ  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$ , wobei  $\text{R}_4 = \text{C}_2 - \text{C}_{18}$ -Alkylen bedeuten, sind Ethylenglycol, Butandiol, Octandiol, Dodecandiol und Octadecandiol.

Beispiele für Diole vom Typ  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$ , wobei  $\text{R}_4 = -[\text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2]_n -$  und  $n = 1 - 200$  ist, sind Polyethylenglycole mit Molmassen von 500 bis 5000.

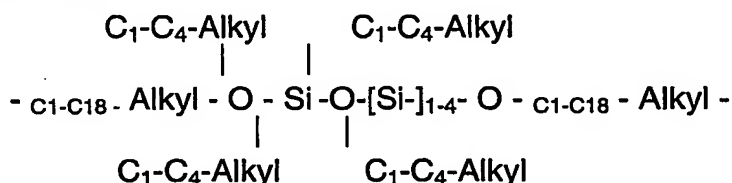
Beispiele für Diole vom Typ  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$ , wobei  $\text{R}_4 = -[\text{CH}_2 - \text{CH}(\text{CH}_3) - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}(\text{CH}_3)]_n -$  und  $n = 1 - 200$  ist, sind Polypropylenglycole mit Molmassen von 500 bis 5000.

Beispiele für Diole vom Typ  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$ , wobei  $\text{R}_4 = -[\text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2]_n -$  und  $n = 1 - 200$  ist, sind Polytetrahydrofurane mit Molmassen von 500 bis 5000.

Beispiele für Diole vom Typ  $\text{HO} - \text{R}_4 - \text{OH}$ , wobei  $\text{R}_4 = -[(\text{CH}_2)_{2-8} - \text{O} - \text{CO} - \text{C}_6 - \text{C}_{14}\text{-Arylen} - \text{CO} - \text{O} - (\text{CH}_2)_{2-8}]_n -$  ist, sind Ester und Polyester auf Basis gesättigter Dicarbonsäuren wie Terephthalsäure, Isophthalsäure oder Naphthalindicarbonsäure und Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol und/oder Hexandiol. Als Ester wird Bis(hydroxyethyl)-terephthalat bevorzugt.

Beispiele für Diöle vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, wobei R<sub>4</sub> = -[(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>2-C12</sub>-Alkylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>]<sub>n</sub> ist, sind Polyester auf Basis gesättigter Dicarbonsäuren wie Adipinsäure und/oder Bernsteinsäure, ungesättigter Dicarbonsäuren wie Maleinsäure, Fumarsäure und/oder Itakonsäure und Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol und/oder Hexandiol.

Beispiele für Diöle vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, wobei R<sub>4</sub> = Siloxangruppen enthaltende Sequenzen des Typs

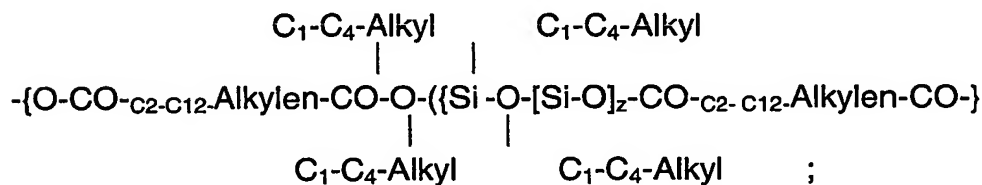
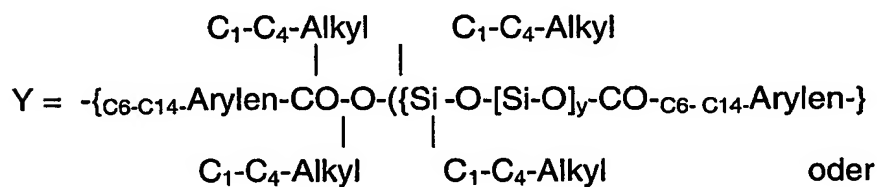


bedeuten, sind 1,3-Bis(hydroxybutyl)tetramethyldisiloxan und 1,3-Bis(hydroxyoctyl)tetraethyldisiloxan.

Beispiele für Polyestersequenzen mit Siloxangruppen enthaltende Diöle vom Typ HO-R<sub>4</sub>-OH, wobei R<sub>4</sub> = -[(X)<sub>r</sub>-O-CO-(Y)<sub>s</sub>-CO-O-(X)<sub>r</sub>]- ist,

bei denen

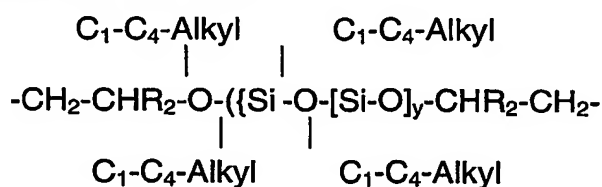
X = {(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>6-C14</sub>-Arylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>}- oder  
-[(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>2-C12</sub>-Alkylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>]-;



r = 1 bis 70; s = 1 bis 70 und y = 3 bis 50 bedeuten;

sind Hydroxylendgruppen enthaltende Polyester auf Basis aromatischer C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylendicarbonsäuren wie Terephthalsäure oder Naphthalindicarbonsäure, aliphatischer C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylendicarbonsäuren wie Adipinsäure, Maleinsäure oder Pimelinsäure, Diolen wie Ethylenglycol, Butandiol, Neopentylglycol oder Hexandiol und Siloxanen wie Hexamethyldisiloxan oder  $\alpha,\omega$ -Dihydroxypolydimethylsiloxan.

Beispiele für Siloxangruppen enthaltende Polyetherdiole HO-R<sub>4</sub>-OH, bei denen R<sub>4</sub> Poly-ethersequenzen des Typs



wobei R<sub>2</sub> = H; C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl und y = 3 bis 50; bedeuten,

sind Polyetherdiole auf Basis von Siloxanen wie Hexamethyldisiloxan oder  $\alpha,\omega$ -Dihydroxypolydimethylsiloxan und Alkylenoxiden wie Ethylenoxid oder Propylenoxid.

Beispiele für Diole auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ 2-Amino-4,6-bis(hydroxy-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylenamino)-1,3,5-triazin sind Diole auf Basis Melamin und Ethylenoxid oder Propylenoxid.

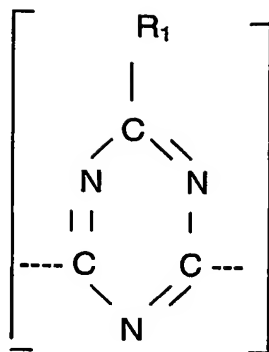
Beispiele für Phenoetherdiole auf Basis zweiwertiger Phenole und C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Diolen vom Typ

Bis(hydroxy-C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen-O-)C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-Arylen sind Ethylenoxidaddukte oder Propylenoxidaddukte an Diphenylolpropan.

Beispiele für geeignete Stabilisatoren und UV-Absorber, die in den Aminoplastergezeugnissen bis zu 2 Masse% enthalten sein können, sind Piperidinderivate, Benzophenonderivate, Benzotriazolderivate, Triazinderivate und/oder Benzofuranonderivate.

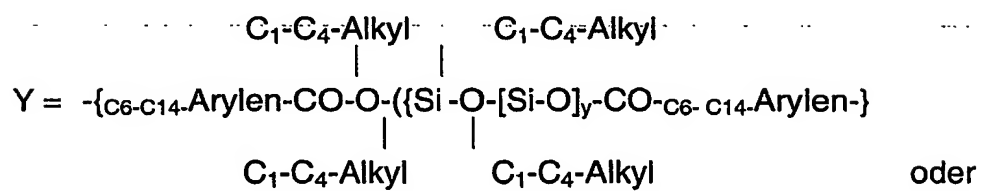
Die Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität werden erfindungsgemäss nach einem Verfahren hergestellt, bei dem Aminoplast-Formmassen, die aus Mischungen aus-schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern bestehen,

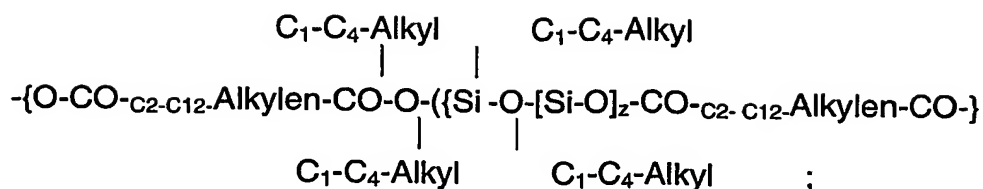
wobei in den Polytriazinethern die Triazinsegmente



•

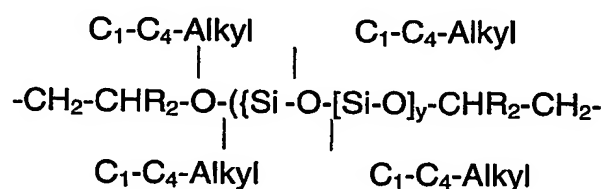
**X = {(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-O-CO-C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen-CO-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2-8</sub>-} oder**





$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_2 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ

- $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Alkylen-O- $\text{C}_6\text{-C}_{18}$ -Arylen-O- $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Alkylen- Sequenzen;

durch Brückenglieder  $-\text{NH-CHR}_2\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  und  $-\text{NH-CHR}_2\text{-NH-}$  sowie gegebenenfalls  $-\text{NH-CHR}_2\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  zu 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern mit linearer und/oder verzweigter Struktur verknüpft sind,

wobei in den Polytriazinethern das Molverhältnis der Substituenten  $R_3 : R_4 = 20 : 1$  bis  $1 : 20$  beträgt,

der Anteil der Verknüpfungen der Triazinsegmente durch Brückenglieder  $-\text{NH-CHR}_3\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_3\text{-NH-}$  5 bis 95 Mol% beträgt,

und wobei die Aminoplast-Formmassen bis zu 75 Masse% Füllstoffe und/oder Adsorbermaterialien, bis zu 50 Masse% weitere reaktive Polymere vom Typ Ethylen-Copolymere, Maleinsäureanhydrid-Copolymere, modifizierte Maleinsäureanhydrid-Copolymere, Poly(meth)acrylate, Polyamide, Polyester und/oder Polyurethane, bis zu 20 Masse% Diöle vom Typ  $\text{HO-R}_4\text{-OH}$  sowie



bis zu 5 Masse% Stabilisatoren, UV-Absorber, Härter und/oder Hilfsstoffe, enthalten können,

in kontinuierlichen Knetern bei Masstemperaturen von 105 bis 260°C und Verweilzeiten von 2 bis 12 min aufgeschmolzen werden und unter Aushärtung der Polytriazinether nach üblichen Verarbeitungsverfahren für thermoplastische Polymere

A) als Schmelze auf einen Glättwerk aufgegeben und als Platte über Transportbänder abgezogen und geschnitten oder auf Flächenbahnen aus Metallfolien, Kunststoffolien, Papierbahnen oder Textilbahnen aufgesiegelt und als Mehrkomponentenverbunde abgezogen und konfektioniert werden,

oder

B) über eine Profildüse ausgetragen und als Profil oder Plattenmaterial abgezogen, geschnitten und konfektioniert werden,

oder

C) über eine Ringdüse ausgetragen, unter Einpressen von Luft als Rohr abgezogen, geschnitten und konfektioniert werden,

oder

D) nach Eindosierung von Treibmitteln über eine Breitschlitzdüse ausgetragen und als geschäumtes Plattenmaterial abgezogen werden,

oder

E) über die Breitschlitzdüse einer Rohrbeschichtungsanlage ausgetragen und schmelzflüssig auf das rotierende Rohr aufgesiegelt werden,

oder

F) in Spritzgussmaschinen, bevorzugt mit Dreizonenschnecken einer Schneckenlänge von 18 bis 24 D, hohen Einspritzgeschwindigkeiten und bei Werkzeugtemperaturen von 70 bis 150°C, zu Spritzgussformteilen verarbeitet werden,

oder

G) in Schmelzespinnanlagen mittels Schmelzepumpe durch das Kapillarwerkzeug in den Blasschacht extrudiert und als Fäden abgezogen oder nach dem Melt-Blow-Verfahren als Fasern abgetrennt, oder als Schmelze nach dem Rotationsspinnverfahren in eine Scherfeldkammer mit organischen

Dispergiermitteln unter Bildung von Faserfibrillen ausgetragen, und in Nachfolgeeinrichtungen weiterverarbeitet werden,

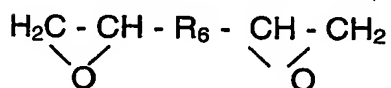
oder

K) zur Schmelzeimprägnierung von nach dem Wickelverfahren, Flechtverfahren oder Pultrusionsverfahren hergestellter Bauteilrohlinge eingesetzt werden,

und die Erzeugnisse gegebenenfalls zur vollständigen Aushärtung einer thermischen Nachbehandlung bei Temperaturen von 180 bis 280°C und Verweilzeiten von 20 bis 120 min unterzogen werden.

Die bei dem Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen verwendeten Aminoplast-Formmassen können in Form von zylindrischen, linsenförmigen, pastillenförmigen oder kugelförmigen Partikeln mit einem mittleren Durchmesser von 0,5 bis 8 mm eingesetzt werden.

Die in den Aminoplast-Formmassen enthaltenen Mischungen aus schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern lassen sich durch Veretherung von methylolierten Aminotriazinethern mit C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoholen, partielle Umetherung der Aminotriazinether mit Diolen vom Typ H-O-R<sub>4</sub>-O-H und/oder partielle Umsetzung mit Bisepoxiden vom Typ



wobei

R<sub>4</sub> = C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylen,  $-\text{[CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-CH}_2\text{-CH}_2\text{]}_n-$ ,  $-\text{[CH}_2\text{-CH(CH}_3\text{)-O-CH}_2\text{-CH(CH}_3\text{)]}_n-$ ,

$-\text{[O-CH}_2\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{]}_n-$

$-\text{[(CH}_2\text{)}_{2-8}\text{-O-CO-C}_6\text{-C}_{12}\text{-Aryl-CO-O-(CH}_2\text{)}_{2-8}\text{]}_n-$ ,

$-\text{[(CH}_2\text{)}_{2-8}\text{-O-CO-C}_6\text{-C}_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2\text{)}_{2-8}\text{]}_n-$ ,

n = 1 bis 200,

Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen oder Polyethersequenzen, Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins, Phenolethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und Diolen,

und  $R_6 = -CH_2-O-C_2-C_{12}-\text{Alkylen}-O-CH_2-$ ,  $-CH_2-O-C_6-C_{14}-\text{Arylen}-O-CH_2-$ ,  
bedeuten, und nachfolgendes Schmelzekneten der Aminotriazinether herstellen.

Neben Diolen können als mehrwertige Alkohole auch drei- und/oder vierwertige Alkohole eingesetzt werden.

Bevorzugt werden bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplasterzeugnisse Aminoplast-Formmassen eingesetzt, bei denen die darin enthaltenen Polytriazinether 30- bis 300-Kern-Polytriazinether sind.

Mit besonderem Vorteil werden bei der Herstellung von Aminoplasterzeugnissen verbesserter Flexibilität Aminoplast-Formmassen eingesetzt, bei denen die darin enthaltenen Polytriazinether Polytriazinether mit  $R_2 = H$  sind.

Bevorzugt sind die bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplasterzeugnisse in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen enthaltenen Härter schwache Säuren vom Typ

- blockierte Sulfonsäuren,
- aliphatische  $C_4-C_{18}$ -Carbonsäuren,
- Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure,
- $C_1-C_{12}$ -Alkylester oder  $C_2-C_8$ -Hydroxyalkylester von  $C_6-C_{14}$ -aromatischen Carbonsäuren oder anorganischen Säuren,
- Salze von Melamin oder Guanaminen mit  $C_1-18$ -aliphatischen Carbonsäuren,
- Anhydride, Halbester oder Halbamide von  $C_4-C_{20}$ -Dicarbonsäuren,
- Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten  $C_4-C_{20}$ -Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ  $C_2-C_{20}$ -Olefine und/oder  $C_8-C_{20}$ -Vinylaromaten,  
und/oder
- Salze von  $C_1-C_{12}$ -Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit  $C_1-C_{18}$ -aliphatischen,  $C_6-C_{14}$ -aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure.

Die in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen als Härter enthaltenen schwachen Säuren können bei der Rezepturierung der Aminoplast-Formmassen und/oder nach dem Aufschmelzen der Aminoplast-Formmassen vor der Ausformung zum Halbzeug bzw. Formstoff zugesetzt werden.

Beispiele für blockierte Sulfonsäuren als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Benzilmonoxim-tosylat,  $\alpha$ -Cyclohexylsulfonyl-oxyimi-no-phenyllessigsäureethylester, Acetonoxim-p-benzoylbenzolsulfonat,  $\alpha$ -(4-Nitro-benzol-sulfonyloxyimino)benzylcyanid, 2-Nitrobenzylsulfonat und 2-Methylsulfonyloxyimino-4-phenyl-but-3-enitril.

Beispiele für aliphatische C<sub>4</sub>-C<sub>18</sub>-Carbonsäuren als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Buttersäure, Capronsäure, Palmitinsäure, Stearinsäure und Ölsäure.

Beispiele für Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure als Härter, die bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen enthalten sind, sind Ammoniumhydrogenphosphat, Natriumpolyphosphat und Kaliumhydrogenphosphat.

Beispiele für C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylester oder C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Hydroxyalkylester von C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-aromatischen Carbonsäuren oder anorganischen Säuren als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Dibutylphthalat, Phthalsäurediglycolester und/oder Trimellithsäureglycolester.

Beispiele für Salze von Melamin oder Guanaminen mit C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-aliphatischen Carbonsäuren als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Melaminformiat, Melamincitrat und/oder Acetoguanaminbutyrat.

Beispiele für Anhydride, Halbester oder Halbamide von  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäuren als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Maleinsäureanhydrid, Mono- $C_1$ - $C_{18}$ -alkylmaleate wie Maleinsäuremonobutylester, Maleinsäuremonoethylhexylester oder Monostearylmaleat oder Maleinsäuremono- $C_1$ - $C_{18}$ -alkylamide wie Maleinsäuremonoethylamid, Maleinsäuremonooctylamid oder Maleinsäuremonostearylamid.

Beispiele für Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefine und/oder  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus Maleinsäureanhydrid und  $C_3$ - $C_8$ - $\alpha$ -Olefinen vom Typ Isobuten, Diisobuten und/oder 4-Methylpenten und/oder Styren mit einem Molverhältnis Maleinsäureanhydrid/ $C_3$ - $C_8$ - $\alpha$ -Olefin bzw. Styren bzw. entsprechender Monomermischungen von 1 : 1 bis 1 : 5.

Beispiele für Salze von  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit  $C_1$ - $C_{18}$ -aliphatischen,  $C_6$ - $C_{14}$ -aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure als Härter bei der Herstellung der erfindungsgemässen Aminoplastergezeugnisse sind Ethanolammmoniumchlorid, Triethylammmoniummaleat, Diethanolammmoniumphosphat und/oder Isopropylammmonium-p-toluolsulfonat.

Beispiele für geeignete Hilfsstoffe, die bei dem erfindungsgemässen Verfahren zur Herstellung von Aminoplastergezeugnissen eingesetzt werden können, sind Verarbeitungshilfsmittel wie Calciumstearat, Magnesiumstearat und/oder Wachse.

Für die Herstellung von Aminoplastergezeugnissen, die Füllstoffe, Adsorbermaterialien, weitere reaktive Polymere, Diole, Stabilisatoren, UV-Absorber und/oder Hilfsstoffe enthalten, können Formmassen eingesetzt werden, in denen diese Komponenten bereits enthalten sind, oder die Komponenten

werden bei der Verarbeitung der Aminoplast-Formmassen zu Aminoplasterzeugnissen zugesetzt.

Für das Aufschmelzen der Aminoplast-Formmassen bei der Herstellung der Aminoplasterzeugnisse sind als kontinuierliche Knet-Extruder mit Kurzkompressionsschnecken oder Dreizonenschnecken mit  $L/D = 20-40$  geeignet. Bevorzugt werden 5-Zonen-Schnecken mit Einzugszone, Kompressionszone, Scherzone, Dekompressionszone und Homogenisierungszone. Schnecken mit Schnittiefen von 1 : 2,5 bis 1 : 3,5 sind bevorzugt geeignet. Besonders günstig ist die Zwischenschaltung von statischen Mischern oder Schmelzepumpen zwischen Zylinder und Düse.

Günstige Massetemperaturen für die aufgeschmolzenen Aminoplast-Formmassen bei der Verarbeitung nach der Glättwerktechnologie zu Aminoplasterzeugnissen in Form von Platten oder Beschichtungen oder bei der Herstellung von Platten, Profilen oder Rohren durch Austrag aus einer Profildüse liegen im Bereich von 140 bis 220°C.

Bei der Herstellung von geschäumtem Plattenmaterial als Aminoplasterzeugnis durch Austrag über eine Breitschlitzdüse können Aminoplast-Formmassen eingesetzt werden, die gasabspaltende Treibmittel wie Natriumhydrogencarbonat, Azodicarbonamid, Zitronensäure/Bicarbonat-Treibsysteme und/oder Cyanursäuretrihydrazid enthalten, oder in die Schmelze werden vor dem Austrag leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Isopentan, Propan und/oder Isobutan, oder Gase wie Stickstoff, Argon und/oder Kohlendioxid dosiert. Günstige Düsentemperaturen für den Austrag der Treibmittel-enthaltenden Schmelze sind 135 bis 185°C. Bevorzugte Schaumdichten der geschäumten Aminoplasterzeugnisse liegen im Bereich von 10 bis 500 kg/m<sup>2</sup>.

Für die Extrusionsbeschichtung von Metallrohren sind Massetemperaturen der Schmelzen aus Aminoplast-Formmassen von 145°C bis 210°C und eine Vorwärmung des Rohrmaterials auf 120 bis 160°C erforderlich.

Vorzugsweise werden bei der Herstellung von Aminoplast-Spritzgusserzeugnissen Spritzgussmaschinen mit Spritzeinheiten eingesetzt, die Dreizonenschnecken mit einer Schneckenlänge von 18 bis 24 D besitzen. Die Einspritzgeschwindigkeit bei der Herstellung der durch Spritzgiessen erzeugten Formteilerzeugnisse soll möglichst hoch eingestellt werden, um Einfallstellen und schlechte Bindenähte auszuschliessen. Bevorzugte Schmelzetemperaturen liegen im Bereich von 170 bis 260°C

Bei der Herstellung von Fasererzeugnissen aus Aminoplasten werden zur gleichmässigen Schmelzedosierung der im Plastifizierextruder aufgeschmolzenen Formmassen über den Schmelzeverteiler zum Kapillarwerkzeug bevorzugt Diphenyl-beheizte Schmelzepumpen für die auf 170-250°C erhitzten Schmelzen eingesetzt.

Die Herstellung von Filamentgarnen als Aminoplasterzeugnisse kann in Kurzspinnanlagen durch Abzug der Fäden mit Hilfe schnelllaufender Galetten mit Fadenabzugsgeschwindigkeiten auf 60 bis 450 m/min und Weiterverarbeitung in Nachfolgeeinrichtungen aus Härtungskammer, Reckeinrichtung und Wickler erfolgen.

Fasern oder Vliese als Aminoplasterzeugnisse können ebenfalls nach dem Melt-Blow-Verfahren durch Applizierung eines hochoverhitzten Luftstroms um die Kapillardüsenöffnungen bei der Extrusion der Fäden aus dem Kapillarwerkzeug in den Blasschacht hergestellt werden. Der Luftstrom verstreckt den geschmolzenen Faden unter gleichzeitiger Zerteilung in viele Einzelfäserchen mit Faserdurchmessern von 0,5 bis 12 µm. Eine Weiterverarbeitung der auf dem Siebtransportband abgelegten Fasern zu Vliesen kann durch Applikation von Thermobondier- oder Vernadelungsprozessen zur Erzielung der erforderlichen Festigkeit und Dimensionsstabilität erfolgen.

Bei dem erfindungsgemässen Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen erfolgt die Herstellung von Faserfibrillen aus den Aminoplastformmassen bevorzugt durch

- Eintrag der Schmelze über Eintragsdüsen bei Schmelzetemperaturen von 160 bis 220°C in eine Scherfeldkammer, die auf 150 bis 210°C erhitzte hochsiedende organische Dispergiermittel, bevorzugt Paraffinöl oder Motorenöl, enthält, wobei in die Scherfeldkammer saure Gase, bevorzugt Chlorwasserstoff oder Schwefeldioxid, eingeleitet werden, und wobei der aus der Eintragsdüse austretende Schmelzestrang durch das vom Rotor verwirbelte Öl unter Faserbildung verstreckt und zerteilt wird,
- Überführung der Dispersion der gebildeten Faserfibrillen in organischen Dispergiermitteln in einen Siebabscheider unter gleichzeitiger Extraktion der hochsiedenden Dispergiermittel mit niedrigsiedenden Kohlenwasserstoffen, bevorzugt Hexan oder Heptan,
- Austrag des Faserfibrillen-Kurzfaservlieses und gegebenenfalls thermische Nachvernetzung des Kurzfaservlieses bei Temperaturen von 190 bis 240°C und Verweilzeiten von 40 bis 120 min, erfolgt.

Aminoplasterzeugnisse in Form von rotationssymmetrischen Bauteilen nach dem Wickelverfahren, in Form komplexer Bauteile nach der Rundflechttechnik oder von Profilen nach der Pultrusionstechnik lassen sich durch Tränkung der Faserrohlinge in Form von Rohren, Fittings, Behältern oder Profilen mit der Schmelze der Aminoplast-Formmasse herstellen.

Die Härte und Flexibilität der hergestellten Erzeugnisse wird durch den Gehalt der Brückenglieder zwischen den Triazinsegmenten, Art und Molmasse des Substituenten  $R_4$  in den Brückengliedern, den Anteil linearer Verknüpfungen zwischen den Triazinsegmenten sowie weiterhin durch den Anteil von längerkettigen Substituenten an den Triazinsegmenten bestimmt, die aus der Umsetzung mit  $C_5$ - $C_{18}$ -Alkoholen resultieren. Je höher der Anteil und die



Molmasse der Brückenglieder, der Anteil der linearen Triazinsegment-Verknüpfungen und der Anteil an längerkettigen Substituenten, um so höher ist die Flexibilität der hergestellten Aminoplasterzeugnisse.

Die Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität werden bevorzugt für Anwendungen mit hohen Anforderungen an Flammfestigkeit und Wärmebeständigkeit im Bauwesen, Maschinenbau und Fahrzeugindustrie, insbesondere in Form von Schaumplatten als Isolationsbauteile, in Form von Platten als Verkleidungselemente, in Form von Rohren und Hohlprofilen in der Lüftungstechnik, in Form von Spritzgussteilen als Funktionsteile sowie in Form von Fasern insbesondere zur Herstellung von Elektroisolationspapieren, Feuerschutzkleidung, Kleidung für hohe Arbeitstemperaturen, Brandschutzdecken, Filtervliesen, Filzen für Papiermaschinen sowie Fahrzeug- bzw. Maschinen-Isolationsabdeckungen, sowie in Form komplexer Bauteile, Behälter oder Profile nach dem Wickel-, Flecht- oder Pultrusionsverfahren eingesetzt.

Die Erfindung wird durch folgende Beispiele erläutert:

## Beispiel 1

### Herstellung von Verbundkunststoffen

#### 1.1 Herstellung der Formmasse aus Polytriazinethern

Für die Herstellung des Polytriazinethers wird als verethertes Melamin-Formaldehyd-Vorkondensat 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin und als Diol der Ethylenglycol-Diether von Bisphenol A (Simulsol BPLE, Seppic S.A., Frankreich) eingesetzt.

Die Umetherung und weitere Kondensation zum Polytriazinether findet bei 200°C im Laborextruder GL 27 D44 mit Vacuumentgasung (Leistritz) bei einem Temperaturprofil von 100°C/130°C/130°C/200°C/200°C/200°C/200°C/200°C/200°C/100°C/100°C und einer durchschnittlichen Verweilzeit von 2 bis 3 min statt. Die Extruderdrehzahl beträgt 150 min<sup>-1</sup>. In die Einzugszone des Extruders werden 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin mit 1,38 kg/h und der Ethylenglycol-Diether von Bisphenol A mit 1,13 kg/h mittels Seitenstromdosierung gravimetrisch dosiert. Der aus dem Extruder austretende Strang des Polytriazinethers wird in einem Granulator geschnitten.

Die durch GPC ermittelte Molmasse des Polytriazinethers beträgt 1800. Der Gehalt an nichtumgesetztem Simulsol BPLE nach HPLC-Analyse (Lösung in THF, UV-Detektion mit externem Standard) beträgt 14 Masse%. Der Anteil der -OCH<sub>3</sub>-Gruppen im Polytriazinether (Ermittlung durch GC-Analyse nach Spaltung des Polytriazinethers mit Mineralsäure) beträgt 14,5 Masse%. Die Viscosität bei 140°C liegt bei 800 Pa.s.

## 1.2 Herstellung von Prepregs und 3D-Profil-Laminaten

Die Herstellung der Prepregs erfolgt über eine Bepulverung von Cellulosevliesen (120g/m<sup>2</sup>, Lenzing AG, Österreich) mit dem fein vermahlenden Polytriazinether nach 1.1 (mittlerer Partikeldurchmesser 0,1 mm) mit anschließender Aufschmelzung des Pulvers im Infrarotstrahlerfeld bei ca. 150°C. Die so hergestellten Prepregs besitzen einen Harzauftrag von ca. 50%.

Die Prepregs werden auf eine Größe von 30x20 cm zugeschnitten. Zur Herstellung eines Formteils mit gebogenen Kanten im Sinne eines U-Profiles werden 3 Prepregs plus ein unbehandeltes Cellulosevlies als Oberseite übereinander in eine auf 150°C vorgeheizte Pressform (30x20cm) gelegt und die Presse langsam zugefahren, wobei sich die Prepregs auf Grund des noch nicht ausgehärteten Harzes leicht verformen lassen. Unter einem Druck von 150 bar wird die Temperatur auf 180°C erhöht und 15 min gepresst. Das fertige Werkstück wird entnommen, langsam abgekühlt und der durch austretendes Harz an der Tauchkante des Presswerkzeuges entstandene Grat abgeschliffen.

Aus dem Werkstück herausgefräste Probekörper besitzen im Biegeversuch ein E-Modul von 5,6 GPa, eine Dehnung bei Maximalkraft von 3,2% und eine Schlagzähigkeit von 12,5 kJ/m<sup>2</sup>.

Der Restgehalt an freiem Simulsol BPLE im Werkstück (8 Std. Extraktion gemahlener Proben mit Dioxan, HPLC-Analyse) liegt bei 0,3 Masse%. Der Anteil der -OCH<sub>3</sub>-Gruppen im vernetzten Polytriazinether (Ermittlung durch GC-Analyse nach Spaltung des Poly-triazinethers mit Mineralsäure) beträgt 2,7 Masse%.

### Beispiel 2

#### Herstellung von Aminoplast-Glasfaserverbunden

## 2.1 Herstellung der Aminoplast-Formmasse

Für die Herstellung des Polytriazinethers wird als verethertes Melamin-Formaldehyd-Vorkondensat 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin und als Diol Bis(hydroxy-ethyl)terephthalat eingesetzt.

Die Umetherung und weitere Kondensation zum Polytriazinether wird diskontinuierlich im Messkneteter (Fa. Haake Polylabsystem 540p) durchgeführt. Nach Vorheizen auf 170°C werden in die Knetkammer 32,5 g Bis(hydroxyethyl)terephthalat und 39,5 g 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin dosiert und bei einer Drehzahl von 50 min<sup>-1</sup> 10 min geknetet. Das während der Compoundierung freiwerdende Methanol wird durch Vakuum aus der Knetkammer entfernt. Nach 10 min werden 5 Masse% Na-Montmorillonit (Südchemie AG) sowie 5 Masse%, jeweils bezogen auf 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin, Polyamid D1466 (Ems-Chemie) zugegeben und weitere 5 min geknetet. Der

Polytriazinether wird nach Abkühlen entnommen und in einer Universal-Mühle 100 UPZ/ II (Alpine Hosokawa) mit Schlagscheibe und 2 mm Sieb gemahlen.

Die durch GPC ermittelte Molmasse des Polytriazinethers beträgt 1600. Der Gehalt an nichtumgesetztem Bis(hydroxyethyl)terephthalat nach HPLC-Analyse (Lösung in THF, UV-Detektion mit externem Standard) beträgt 18 Masse%. Der Anteil der -OCH<sub>3</sub> - Gruppen im Polytriazinether (Ermittlung durch GC-Analyse nach Spaltung des Polytriazinethers mit Mineralsäure) beträgt 14,3 Masse%. Die Viskosität bei 140°C liegt bei 200 Pa.s.

## 2.2 Herstellung von mit Endlosglasfasern verstärkten Platten

Zur Herstellung Endlosglasfaser-verstärkter Aminoplast-Platten werden 10 Ansätze des in 2.1 hergestellten Granulats im Laborextruder bei 190°C

aufgeschmolzen und über eine Breitschlitzdüse kontinuierlich auf ein mit 0,8 m/min bewegtes Glasfaservlies ( $105 \text{ g/m}^2$ ) aufgegeben. Durch die Imprägnierung erhöht sich die Flächenmasse des Glasfaservlieses auf  $165 \text{ g/m}^2$ . Das imprägnierte Glasfaservlies wird zusammen mit zwei weiteren auf diese Art behandelten Glasfaservliesen kontinuierlich über eine Heizkammer mit  $150^\circ\text{C}$  in eine Doppelbandpresse geführt und bei  $180^\circ\text{C}$  mit einem Druck von 20 bar zum Verbund verpresst.

Die mechanische Prüfung von Prüfkörpern, die aus dem Verbund ausgefräst wurden, ergab im Biegeversuch ein E-Modul von 7,3 GPa, eine Dehnung bei Maximalkraft von 3,2%, eine Schlagzähigkeit von  $9,5 \text{ kJ/m}^2$  sowie eine Wassersorption von 0,08%.

Der Restgehalt an freiem Bis(hydroxyethyl)terephthalat (8 Std. Extraktion gemahlener Proben mit Dioxan, HPLC-Analyse) beträgt 0,5 Masse%. Der Anteil der  $-\text{OCH}_3$ -Gruppen im vernetzten Polytriazinether (Ermittlung durch GC-Analyse nach Spaltung des Polytriazinethers mit Mineralsäure) beträgt 1,7 Masse%.

### Beispiel 3

#### Herstellung von Rohren

In einen Leistritz-Doppelschnecken-Extruder ZSK 27,  $L/D=44$  mit gleichläufigen Schnecken, Dosiereinrichtung für Fasermaterialien im 4. Zylinder und einer Dekompressionszone für Vacuumtgasung, Temperaturprofil 20/120/120/120/120/120/ 120/120/140/160°C, werden in die Einzugszone mit 9 kg die Aminoplast-Formmasse entsprechend Beispiel 1, mit 4,5 kg/h Granulat aus Ethylen-Vinylacetat-Copolymer (Schmelzindex 18g/10min bei 190°C/2,19 kp, Vinylacetatgehalt 17 Masse%) und mit 0,75 kg/h Wollastonit (Tremin 939, Quarzwerke Österreich) dosiert. Nach Mischung und Homogenisierung der Komponenten werden im 4. Zylinder Cellulosefasern in Form von Kardenband zugeben, indem sie direkt von einer Spule abgewickelt und vom Extruder selbst eingezogen werden. Nach Zerkleinerung der Fasern, intensiver Homogenisierung und Kondensation wird die Mischung in ein Siebdorn-Rohrwerkzeug, welches mehrstufig dielektrisch auf einen Temperaturgradienten von 160-195°C beheizt ist, als rundes Hohlprofil ausgetragen.

Wird die Mischung anstelle durch das Siebdorn-Rohrwerkzeug durch ein Profilwerkzeug 10 x 4 mm ausgetragen, so besitzen aus dem Profil hergestellte Normprüfstäbe im Biegeversuch einen E-Modul von 9,2 GPa und eine Schlagzähigkeit von 12 kJ/m<sup>2</sup>.

### Beispiel 4 Herstellung von Spritzgiessformteilen

#### 4.1. Herstellung der Formmasse

In einen Leistritz-Doppelschnecken-Extruder ZSK 27,  $L/D=44$ , mit gleichläufigen Schnecken, Seitenstromdosiereinrichtung für pulverförmige Medien im 7. Zylinder und einer Dekompressionszone für Vacuumtgasung, Temperaturprofil 20/120/120/120/120/ 120/120/120/120/100°C, werden in die Einzugszone mit 7,5

kg/h der Polytriazinether entsprechend Beispiel 1 , mit 1,5 kg/h Glasfaserschnitzel (Aminosilanschlichte, Faserquerschnitt  $17\ \mu\text{m}$ , Faserlänge 3mm) und mit 0,5 kg/h handelsüblicher Nitril-Kautschuk dosiert. Über die-Seitenstromdosiereinrichtung-im 7. Zylinder wird ein Gemisch aus 20 Masse% Zeolith (Molekularsieb 5A, UOP GmbH) und 80 Masse% Kaolin TEC 2 (Quarzwerte,

Österreich) mit 1,0 kg/h zugegeben. Nach intensiver Homogenisierung wird die Mischung ausgetragen und granuliert.

#### 4.2 Herstellung von Formteilen mittels Spritzgiess-Technik

Das Granulat nach 4.1 wird mit einer Spritzgiessmaschine zu Verbundplatten verarbeitet. Im Förderteil wird eine Temperatur von  $110^{\circ}\text{C}$  eingestellt. Die Temperatur der Spritzgusskammer liegt bei ca.  $150^{\circ}\text{C}$ , und es wurde ein Spritzdruck von ca.  $100\ \text{N/cm}^2$  eingestellt. Nach einer Verweilzeit von 5 min ist das Werkstück ausgehärtet und kann nach Abkühlung entnommen werden.

Die entstehenden Verbundplatten besitzen kratzfeste Oberflächen und sind wasserdampf- und chemikalienresistent. Ausgefräste Normstäbe haben im Biegeversuch einen E-Modul von 7,8 GPa, eine Schlagzähigkeit von  $9,7\ \text{kJ/m}^2$  und eine Dehnung von 4,1%.

#### Beispiel 5 Herstellung von fasergefüllten Profilstäben

In einen Leistritz-Doppelschnecken-Extruder ZSK 27,  $L/D=44$  mit gleichläufigen Schnecken, Seitenstromdosiereinrichtung für pulverförmige Medien im 4. Zylinder, einer Dekompressionszone für Vacuumentgasung und einem Profilwerkzeug  $4 \times 10\ \text{mm}$ , Temperaturprofil  $20/120/120/120/120/120/120/120/140/160^{\circ}\text{C}$ , werden in die Einzugszone mit 6,7 kg/h der Polytriazinether nach Beispiel 1, mit 0,7 kg/h Styrol-Maleinsäureanhydrid-Copolymer (Styrol:MSA=2:1), mit 1,3 kg/h Cellulosekurzfasern (3 mm), und mit 1,3 kg/h Polyamidkurzfasern (3 mm) dosiert.

Über die Seitenstrom-dosiereinrichtung im 4. Zylinder wird mit 1 kg/h ein mit Aminopropyltriethoxysilan modifizierter Na-Montmorillonit zugegeben. Nach intensiver Homogenisierung und Kondensation wird die Mischung in einer Profildüse zu einem Vollprofil geformt und nach Aushärtung durch Temperung konfektioniert.

Aus dem Profil geschnittene Normprüfstäbe ergaben im Biegeversuch einen E-Modul von 10,5 GPa, eine Dehnung von 3,7% und eine Schlagzähigkeit von 13,1 kJ/m<sup>2</sup>.



## Beispiel 6

### Herstellen einer Verbundplatte mittels Niederdruckverfahren

#### 6.1 Herstellung der Aminoplast-Formmasse

Für die Herstellung des Polytriazinethers wird als verethertes Vorkondensat eine Mischung aus 20 Masse% 2,4-Bis-methoxymethylamino-6-methyl-1,3,5-triazin und 80 Masse% 2,4,6-Tris-methoxymethylamino-1,3,5-triazin und als Diol ein Oligool auf Basis Pentaerythrit (Simulsol PTKE, Seppic S.A., Frankreich) eingesetzt.

In einem Laborextruder GL 27 D44 (Leistritz) mit Vacuumentgasung, Temperaturprofil

130°C/150°C/190°C/230°C/230°C/230°C/230°C/230°C/230°C/100°C/100°C

werden in den Einzugsstrichter mit 1,38 kg/h die Mischung des veretherten Vorkondensats und mittels Seitenstromdosierung in die Einzugszone mit 1,12 kg/h das Oligool auf Basis Pentaerythrit gravimetrisch dosiert. In die Zone 8 des Extruders wird über eine Seitenstromdosierung mit 0,1 kg/h ein mit Bernsteinsäure oberflächlich benetzter Natriummontmorillonit (Südchemie, Moosburg Deutschland) zudosiert. Die Extrusion findet bei einer durchschnittlichen Verweilzeit von 3 bis 4 min statt. Die Extruderdrehzahl beträgt  $150 \text{ min}^{-1}$ . Der aus dem Extruder austretende Strang des gefüllten Polytriazinethers wird in einem Granulator geschnitten. Die Aminoplast-Formmasse zeichnet sich durch eine niedrige Viskosität bei 150°C von ca. 100-200 Pas aus.

#### 6.2 Herstellen der Verbundplatte

In einem Vorratsbehälter wird die Aminoplast-Formmasse nach 6.1 bei 150°C aufgeschmolzen. In das Werkzeug wird ein Kohlenstoff-Filamentgewebe mit  $245 \text{ g/m}^2$  eingelegt. Das Werkzeug wird auf 150°C temperiert, geschlossen und ein Vakuum von 130 mbar angelegt. Nach Öffnen des Injektionsstutzens fließt das Harz in das Werkzeug, wobei nach vollständiger Tränkung des Vlieses nach 4 min

überschüssiges Harz abgesaugt wird. Nach einer Härtingszeit von 6 min kann die ausgehärtete Platte entnommen werden.

Aus der Platte herausgefräste Probestäbe haben eine Zugfestigkeit von 230 MPa und eine Schlagzähigkeit von 35 kJ/cm<sup>2</sup>.

#### Beispiel 7

##### Herstellung von Endlosfasern

Die Aminoplast-Formmasse entsprechend Beispiel 1 wird in einem Laborextruder aufgeschmolzen und auf 120°C erwärmt.

Die Schmelze wird bei konstanter Temperatur zur Einzugsöffnung einer Spinnpumpe gefördert. Mit der Spinnpumpe wird der für die Durchströmung eines Schmelzefilters und einer Spinndüse mit 6 Löchern erforderliche Vordruck aufgebaut. Die Schmelze des Polytriazinethers wird bei einer Abzugsgeschwindigkeit von 1300 m/min in einem von erwärmten Stickstoff durchströmten Abzugsschacht auf einen Fadendurchmesser von 8 - 10 µm ausgezogen und abgekühlt.

Nach Erstarren des Harzes werden die Fasern in einem zweiten Abschnitt des Abzug-schachtes in saurer Atmosphäre (trockener HCl) vollständig ausgehärtet und auf übliche Weise konfektioniert. Die ausgehärteten Fasern besitzen eine Dehnung von 4,2 %.

#### Beispiel 8

##### Herstellung von Aminoplast-Glasfaserverbunden

### 8.1 Herstellung der Aminoplast-Formmasse

Für die Herstellung des Polytriazinethers wird als verethertes Vorkondensat eine Mischung aus 75 Masse% 2,4,6-Tris-Ethoxymethylamino-1,3,5-triazin und 25 Masse% eines Triazinmethylethers, der aus einem Vorkondensat aus Butyroguanamin/Melamin 1 : 5 als Aminotriazinkomponente und Butyraldehyd/Formaldehyd 1:8 als Aldehydkomponente bei einem Aldehyd/Aminotriazin - Verhältnis 3 : 1 hergestellt wurde, eingesetzt. Die Diolkomponente bildet eine Mischung aus 50 Masse% Butandiol und 50 Masse% eines Polypropylenglycols mit einer Molmasse von 500.

Die Umetherung und weitere Kondensation zum Polytriazinether wird diskontinuierlich im Messknetter (Fa. Haake Polylabsystem 540p) durchgeführt. Nach Vorheizen auf 175°C werden in die Knetkammer 45 g der Triazinethermischung und 35 g der Mischung der Diolkomponenten dosiert und bei einer Drehzahl von 50 min<sup>-1</sup> 12 min geknetet. Die während der Compoundierung freiwerdende Alkoholmischung wird durch Vakuum aus der Knetkammer entfernt. Nach 10 min werden 5 Masse% Na-Montmorillonit (Südchemie AG) sowie 5 Masse%, jeweils bezogen auf die Aminotriazinmischung, Polyamid D1466 (Ems-Chemie) zugegeben und weitere 5 min geknetet. Der Polytriazinether wird nach Abkühlen entnommen und in einer Universal-Mühle 100 UPZ/ II (Alpine Hosokawa) mit Schlagscheibe und 2 mm Sieb gemahlen.

### 2.3 Herstellung von mit Endlosglasfasern verstärkten Platten

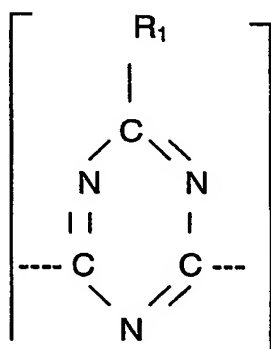
Zur Herstellung Endlosglasfaser-verstärkter Aminoplast-Platten werden 10 Ansätze des in 2.1 hergestellten Granulat im Laborextruder bei 195°C aufgeschmolzen und über eine Breitschlitzdüse kontinuierlich auf ein mit 0,8 m/min bewegtes Glasfaservlies (105 g/m<sup>2</sup>) aufgegeben. Durch die Imprägnierung erhöht sich die Flächenmasse des Glasfaservlieses auf 155 g/m<sup>2</sup>. Das imprägnierte Glasfaservlies wird zusammen mit zwei weiteren auf diese Art behandelten Glasfaservliesen kontinuierlich über eine Heizkammer mit 155°C in

eine Doppelbandpresse geführt und bei 180°C mit einem Druck von 20 bar zum Verbund verpresst.

Die mechanische Prüfung von Prüfkörpern, die aus dem Verbund ausgefräst wurden, ergab im Biegeversuch ein E-Modul von 6,3 GPa, eine Dehnung bei Maximalkraft von 4,2%, eine Schlagzähigkeit von 15 kJ/m<sup>2</sup> sowie eine Wassersorption von 0,14%.

# Patentansprüche

1. Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität, dadurch gekennzeichnet, dass die Aminoplasterzeugnisse Erzeugnisse auf Basis von Aminoplast-Formmassen, die aus Mischungen aus schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern bestehen, sind, wobei in den Polytriazinethern die Triazinsegmente



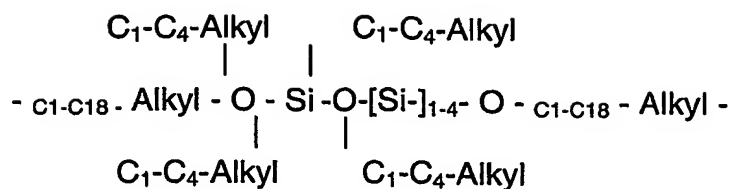
$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-O-R_3, -NH-CHR_2-O-R_4-OH, -OH, \text{Phthalimido-}, \text{Succinimido-},$   
 $-NH-CHR_2-O-R_4-O-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-O-CHR_2-NH-,$

$R_2 = H, C_1-C_7 - \text{Alkyl};$

$R_3 = C_1-C_{18} - \text{Alkyl}, H;$

$R_4 = C_2-C_{18}\text{-Alkylen}, -CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-O-CH}_2\text{-CH(CH}_3\text{)-},$   
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}\text{-Arylen-O-CH}_2\text{-CH(CH}_3\text{)-},$   
 $-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-, -[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-, -[O-CH_2-CH_2-$   
 $CH_2-CH_2-]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2\text{)}_{2-8}]_n-,$   
 $-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2\text{)}_{2-8}]_n-,$   
 wobei  $n = 1$  bis 200;

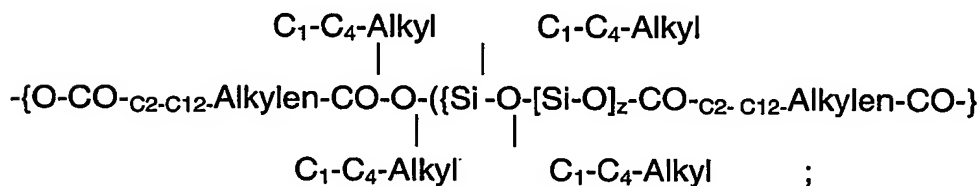
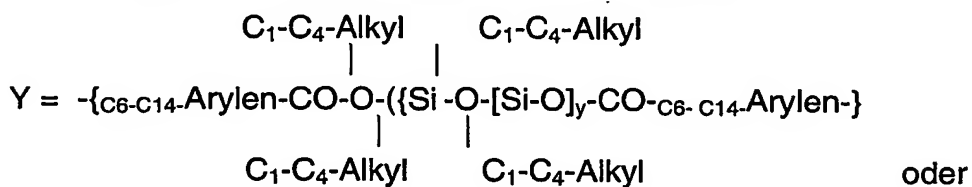
- Siloxangruppen enthaltende Sequenzen des Typs



- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-(X)_r\text{-O-CO-(Y)}_s\text{-CO-O-(X)}_r\text{-}$ ,

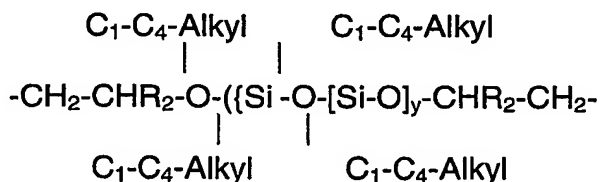
bei denen

$X = \{(\text{CH}_2)_{2-8}\text{-O-CO-C}_{6-14}\text{-Arylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}\}$  oder  
 $\{(\text{CH}_2)_{2-8}\text{-O-CO-C}_{2-12}\text{-Alkylen-CO-O-(CH}_2)_{2-8}\}$ ;



$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_2 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ

2-Amino-4,6-di- $\text{C}_{2-4}$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenoethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Diolen vom Typ

$\text{-C}_{2-8}\text{-Alkylen-O-C}_{6-18}\text{-Arylen-O-C}_{2-8}\text{-Alkylen-}$  Sequenzen;

durch Brückenglieder  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  und  $\text{-NH-CHR}_2\text{-NH-}$  sowie gegebenenfalls  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  zu 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern mit linearer und/oder verzweigter Struktur verknüpft sind;

wobei in den Polytriazinethern das Molverhältnis der Substituenten  $R_3 : R_4 = 20 : 1$  bis  $1 : 20$  beträgt,

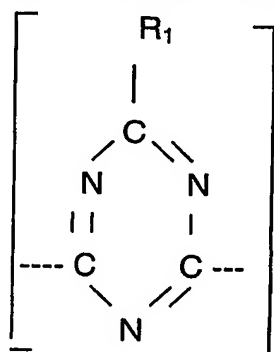
der Anteil der Verknüpfungen der Triazinsegmente durch Brückenglieder  $\text{-NH-CHR}_3\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_3\text{-NH-}$  5 bis 95 Mol% beträgt,

und wobei die Aminoplast-Formmassen bis zu 75 Masse% Füllstoffe und/oder Adsorbermaterialien, bis zu 50 Masse% weitere reaktive Polymere vom Typ Ethylen-Copolymere, Maleinsäureanhydrid-Copolymere, modifizierte Maleinsäureanhydrid-Copolymere, Poly(meth)acrylate, Polyamide, Polyester und/oder Polyurethane, bis zu 20 Masse% Diole des Typs  $\text{HO-R}_4\text{-OH}$ , sowie bis zu 5 Masse% Stabilisatoren, UV-Absorber, Härter und/oder Hilfsstoffe, enthalten können.

2. Aminoplasterzeugnisse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Aminoplasterzeugnisse durch Schmelzverarbeitung hergestellte Halbzeuge, bevorzugt Platten, Rohre, Profile, Beschichtungen, Schaumstoffe oder Fasern, oder Formstoffe, bevorzugt Spritzgussteile, oder aus Fasern nach der Wickel-, Flecht- oder Pultrusionstechnik und nachfolgender Harzimprägnierung hergestellte Bauteile, sind.
3. Aminoplasterzeugnisse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die in den Aminoplasterzeugnissen enthaltenen Füllstoffe bzw. Adsorbermaterialien  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al(OH)}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ , Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Glaskugeln, Kieselerde, Glimmer, Quarzmehl, Schiefermehl, Mikrohohlkugeln, Russ, Talkum, Schichtsilikate, Molekularsiebe, Gesteinsmehl, Holzmehl, Cellulose, Cellulosederivate, bevorzugt als Füllstoffe Schichtsilikate vom Typ Montmorillonit, Bentonit, Kaolinit, Muskovit, Hectorit, Fluorhectorit, Kanemit, Revdit, Grumantit, Ilerit, Saponit, Beidelit, Nontronit, Stevensit, Laponit, Taneolit, Vermiculit, Halloysit, Volkonskoit, Magadit, Rectorit, Kenyait, Sauconit, Borfluorphlogopite und/oder synthetische Smectite, sowie bevorzugt

als Adsorbermaterial Schichtsilikate vom Typ Montmorillonit, Bentonit, Hectorit, Molekularsiebe des Typen A, X, Y, besonders 5A, Adsorber auf Siliciumdioxidbasis, Mikrohohlkugeln, Cellulose und/oder Cellulosederivate sind.

4. Aminoplasterzeugnisse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die in den Aminoplasterzeugnissen enthaltenen Verstärkungsfasern anorganische Fasern, insbesondere Glasfasern und/oder Kohlenstofffasern, Naturfasern, insbesondere Cellulosefasern sowie Flachs, Jute, Kenaf und Holzfasern, und/oder Kunststofffasern, insbesondere Fasern aus Polyacrylnitril, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, Polypropylen, Polyestern und/oder Polyamiden, sind.
5. Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen verbesserter Flexibilität, dadurch gekennzeichnet, dass Aminoplast-Formmassen, die aus Mischungen aus schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern bestehen, wobei in den Polytriazinethern die Triazinsegmente



$R_1 = -NH_2, -NH-CHR_2-O-R_3, -NH-CHR_2-O-R_4-OH, -OH, \text{Phthalimido-}, \text{Succinimido-},$   
 $-NH-CHR_2-O-R_4-O-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-NH-, -NH-CHR_2-O-CHR_2-NH-,$

$R_2 = H, C_1-C_7 - \text{Alkyl};$

$R_3 = C_1-C_{18} - \text{Alkyl}, H;$



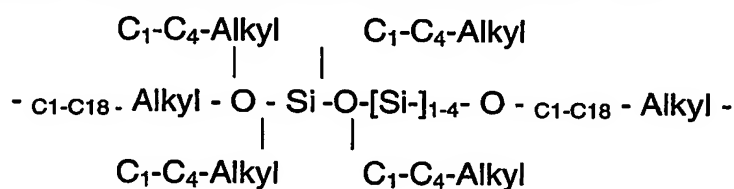
$R_4 = C_2-C_{18}$ -Alkylen,  $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}$ -Alkylen- $O-CH_2-CH(CH_3)-$ ,  
 $-CH(CH_3)-CH_2-O-C_2-C_{12}$ -Arylen- $O-CH_2-CH(CH_3)-$ ,  
 $-[CH_2-CH_2-O-CH_2-CH_2]_n-$ ,  $-[CH_2-CH(CH_3)-O-CH_2-CH(CH_3)]_n-$ ,  $-[O-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2]_n-$ ,

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}$ -Arylen- $CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-$ ,

$-[(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}$ -Alkylen- $CO-O-(CH_2)_{2-8}]_n-$ ,

wobei  $n = 1$  bis  $200$ ;

- Siloxangruppen enthaltende Sequenzen des Typs

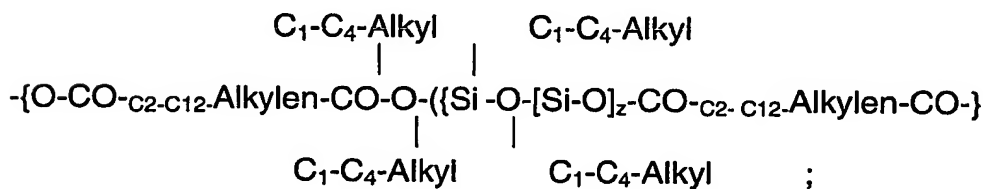
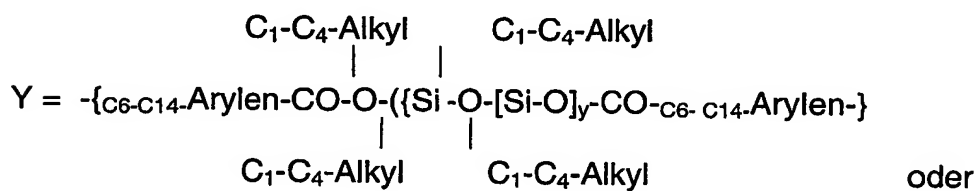


- Siloxangruppen enthaltende Polyestersequenzen des Typs  $-[(X)_r-O-CO-(Y)_s-CO-O-(X)_r]-$ ,

bei denen

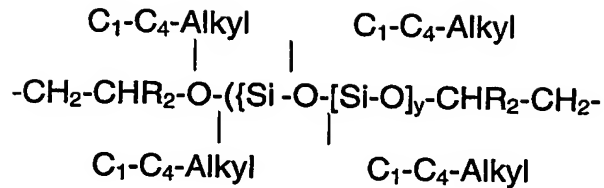
$X = \{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_6-C_{14}$ -Arylen- $CO-O-(CH_2)_{2-8}\}$  oder

$\{(CH_2)_{2-8}-O-CO-C_2-C_{12}$ -Alkylen- $CO-O-(CH_2)_{2-8}\}$ ;



$r = 1$  bis  $70$ ;  $s = 1$  bis  $70$  und  $y = 3$  bis  $50$  bedeuten;

- Siloxangruppen enthaltende Polyethersequenzen des Typs



wobei  $R_2 = \text{H}$ ;  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$  und  $y = 3$  bis 50 bedeuten;

- Sequenzen auf Basis von Alkylenoxidaddukten des Melamins vom Typ  
2-Amino-4,6-di- $\text{C}_2\text{-C}_4$ -alkylenamino-1,3,5-triazin - Sequenzen:

- Phenolethersequenzen auf Basis zweiwertiger Phenole und  $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Dien  
vom Typ

- $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Alkylen-O- $\text{C}_6\text{-C}_{18}$ -Arylen-O- $\text{C}_2\text{-C}_8$ -Alkylen- Sequenzen;

durch Brückenglieder  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  und  $\text{-NH-CHR}_2\text{-NH-}$  sowie  
gegebenenfalls  $\text{-NH-CHR}_2\text{-O-CHR}_2\text{-NH-}$  zu 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern  
mit linearer und/oder verzweigter Struktur verknüpft sind,

wobei in den Polytriazinethern das Molverhältnis der Substituenten  $R_3 : R_4 =$   
20 : 1 bis 1 : 20 beträgt,

der Anteil der Verknüpfungen der Triazinsegmente durch Brückenglieder  $\text{-NH-}$   
 $\text{CHR}_3\text{-O-R}_4\text{-O-CHR}_3\text{-NH-}$  5 bis 95 Mol% beträgt,

und wobei die Aminoplast-Formmassen bis zu 75 Masse% Füllstoffe und/oder  
Adsorbermaterialien, bis zu 50 Masse% weitere reaktive Polymere vom Typ  
Ethylen-Copolymere, Maleinsäureanhydrid-Copolymere, modifizierte  
Maleinsäureanhydrid-Copolymere, Poly(meth)acrylate, Polyamide, Polyester  
und/oder Polyurethane, bis zu 20 Masse% Diöle des Typs  $\text{HO - R}_4\text{ - OH}$ ,  
sowie bis zu 2 Masse% Stabilisatoren, UV-Absorber, Härter und/oder  
Hilfsstoffe, enthalten können,

in kontinuierlichen Knetern bei Massetemperaturen von 105 bis 260°C und  
Verweilzeiten von 2 bis 12 min aufgeschmolzen werden und unter Aushärtung der  
Polytriazinether nach üblichen Verarbeitungsverfahren für thermoplastische  
Polymere

A) als Schmelze auf einen Glättwerk aufgegeben und als Platte über Transportbänder abgezogen und geschnitten oder auf Flächenbahnen aus Metallfolien, Kunststoffolien, Papierbahnen oder Textilbahnen aufgesiegelt und als Mehrkomponentenverbunde abgezogen und konfektioniert werden,

oder

B) über eine Profildüse ausgetragen und als Profil oder Plattenmaterial abgezogen, geschnitten und konfektioniert werden,

oder

C) über eine Ringdüse ausgetragen, unter Einpressen von Luft als Rohr abgezogen, geschnitten und konfektioniert werden,

oder

D) nach Eindosierung von Treibmitteln über eine Breitschlitzdüse ausgetragen und als geschäumtes Plattenmaterial abgezogen werden,

oder

E) über die Breitschlitzdüse einer Rohrbeschichtungsanlage ausgetragen und schmelz-flüssig auf das rotierende Rohr aufgesiegelt werden,

oder

F) in Spritzgussmaschinen, bevorzugt mit Dreizonenschnecken einer Schneckenlänge von 18 bis 24 D, hohen Einspritzgeschwindigkeiten und bei Werkzeugtemperaturen von 70 bis 150°C, zu Spritzgussformteilen verarbeitet werden,

oder

G) in Schmelzespinnanlagen mittels Schmelzepumpe durch das Kapillarwerkzeug in den Blasschacht extrudiert und als Fäden abgezogen oder nach dem Melt-Blow-Verfahren als Fasern abgetrennt, oder als Schmelze nach dem Rotationsspinnverfahren in eine Scherfeldkammer mit organischen Dispergiermitteln unter Bildung von Faserfibrillen ausgetragen, und in Nachfolgeeinrichtungen weiterverarbeitet werden,

oder

K) zur Schmelzeimprägung von nach dem Wickelverfahren, Flechtverfahren oder Pultrusionsverfahren hergestellter Bauteilrohlinge eingesetzt werden,

und die Erzeugnisse gegebenenfalls zur vollständigen Aushärtung einer thermischen Nachbehandlung bei Temperaturen von 180 bis 280°C und Verweilzeiten von 20 bis 120 min unterzogen werden.

6. Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen nach Anspruch 5 , dadurch gekennzeichnet, dass die in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen enthaltenen Polytriazinether 30- bis 300-Kern-Polytriazinether sind.
7. Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen verbesserter Flexibilität nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass die in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen enthaltenen Polytriazinether Polytriazinether mit  $R_2 = H$  sind.
8. Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen verbesserter Flexibilität nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass die in den eingesetzten Aminoplast-Formmassen enthaltenen Härter schwache Säuren vom Typ
  - blockierte Sulfonsäuren,
  - aliphatische  $C_4$ - $C_{18}$ -Carbonsäuren,
  - Alkalisalze oder Ammoniumsalze der Phosphorsäure,
  - $C_1$ - $C_{12}$ -Alkylester oder  $C_2$ - $C_8$ -Hydroxyalkylester von  $C_6$ - $C_{14}$ -aromatischen Carbonsäuren oder anorganischen Säuren,
  - Salze von Melamin oder Guanaminen mit  $C_1$ - $C_{18}$ -aliphatischen Carbonsäuren,
  - Anhydride, Halbester oder Halbamide von  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäuren,
  - Halbester oder Halbamide von Copolymeren aus ethylenisch ungesättigten  $C_4$ - $C_{20}$ -Dicarbonsäureanhydriden und ethylenisch ungesättigten Monomeren vom Typ  $C_2$ - $C_{20}$ -Olefine und/oder  $C_8$ - $C_{20}$ -Vinylaromaten, und/oder
  - Salze von  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkylaminen bzw. Alkanolaminen mit  $C_1$ - $C_{18}$ -aliphatischen,  $C_6$ - $C_{14}$ -aromatischen oder alkylaromatischen Carbonsäuren

sowie anorganischen Säuren vom Typ Salzsäure, Schwefelsäure oder Phosphorsäure, sind.

9. Verfahren zur Herstellung von Aminoplasterzeugnissen nach Anspruch 5 , dadurch gekennzeichnet, dass die Herstellung von Faserfibriden aus den Aminoplastformmassen durch

- Eintrag der Schmelze über Eintragsdüsen bei Schmelzetemperaturen von 160 bis 220°C in eine Scherfeldkammer, die auf 150 bis 210°C erhitzte hochsiedende organische Dispergiermittel, bevorzugt Paraffinöl oder Motorenöl, enthält, wobei in die Scherfeldkammer saure Gase, bevorzugt Chlorwasserstoff oder Schwefeldioxid, eingeleitet werden, und wobei der aus der Eintragsdüse austretende Schmelzestrang durch das vom Rotor verwirbelte Öl unter Faserbildung verstreckt und zerteilt wird,
- Überführung der Dispersion der gebildeten Faserfibride in organischen Dispergiermitteln in einen Siebabscheider unter gleichzeitiger Extraktion der hochsiedenden Dispergiermittel mit niedrigsiedenden Kohlenwasserstoffen, bevorzugt Hexan oder Heptan,
- Austrag des Faserfibrid-Kurzfaserflusses und gegebenenfalls thermische Nachvernetzung des Kurzfaserflusses bei Temperaturen von 180 bis 210°C und Verweilzeiten von 40 bis 120 min,

erfolgt.

10. Verwendung von Aminoplasterzeugnissen verbesserter Flexibilität nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4 für Anwendungen mit hohen Anforderungen an Flammfestigkeit und Wärmebeständigkeit im Bauwesen, Maschinenbau und Fahrzeugindustrie, insbesondere in Form von Schaumplatten als Isolationsbauteile, in Form von Platten als Verkleidungselemente, in Form von Rohren und Hohlprofilen in der Lüftungstechnik, in Form von Spritzgussteilen als Funktionsteile sowie in Form von Fasern insbesondere zur Herstellung von Elektroisolationspapieren, Feuerschutzkleidung, Kleidung für hohe Arbeitstemperaturen, Brandschutzdecken, Filtervliesen, Filzen für Papiermaschinen sowie Fahrzeug- bzw. Maschinen-Isolationsabdeckungen, sowie in Form komplexer Bauteile, Behälter oder Profile nach dem Wickel-, Flecht- oder Pultrusionsverfahren.

## Zusammenfassung

Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität wie Platten, Rohre, Profile, Beschichtungen, Schaumstoffe, Fasern oder Spritzgussteile werden durch thermoplastische Verarbeitung von Formmassen aus Mischungen von schmelzbaren 20- bis 1000-Kern-Polytriazinethern, in denen die Triazinringe durch Alkylendiaminogruppen und Aminoendgruppen enthaltende längerkettige Sequenzen verknüpft sind, hergestellt, wobei die Formmassen bis zu 75 Masse% Füllstoffe und/oder Adsorbermaterialien, bis zu 50 Masse% weitere reaktive Polymere vom Typ Ethylen-Copolymere, Maleinsäureanhydrid-Copolymere, modifizierte Maleinsäureanhydrid-Copolymere, Poly(meth)acrylate, Polyamide, Polyester, und/oder Polyurethane, bis zu 20 Masse% Diole sowie bis zu 2 Masse% Stabilisatoren, UV-Absorber und/oder Hilfsstoffe, enthalten können.

Die Aminoplasterzeugnisse verbesserter Flexibilität werden bei hohen Anforderungen an Flammfestigkeit und Wärmebeständigkeit im Bauwesen, Maschinenbau, Fahrzeugindustrie und Brandschutztechnik eingesetzt.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☒ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**